

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

18.10.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

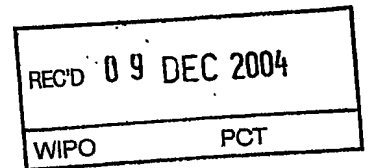
This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2004年 2月 2日

出願番号
Application Number: 特願2004-026134

[ST. 10/C]: [JP2004-026134]

出願人
Applicant(s): 原子燃料工業株式会社

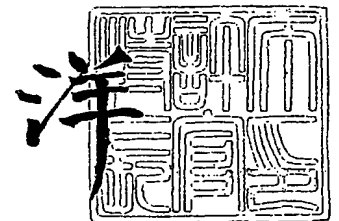


PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年11月26日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願
【整理番号】 G031005
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 B01J 8/04
【発明者】
 【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村村松 3 1 3 5 - 4 1 原子燃料工業株式会社
 東海事業所内
 【氏名】 西村 一久
【特許出願人】
 【識別番号】 000165697
 【氏名又は名称】 原子燃料工業株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100087594
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 福村 直樹
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 012069
 【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 9807699

【書類名】特許請求の範囲**【請求項 1】**

アンモニア水溶液を貯留する貯留槽と、前記貯留槽中のアンモニア水溶液中で、前記貯留槽に滴下された硝酸ウラニルとアンモニアとが反応して形成された重ウラン酸アンモニウム粒子が上昇流動可能となるように、アンモニア水溶液を前記貯留槽の底部に供給するアンモニア水溶液供給手段とを備えてなることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

【請求項 2】

前記貯留槽の側面部および底部には、それぞれ側面部開口部および底部開口部が形成され、前記アンモニア水溶液供給手段は、前記側面部開口部と前記底部開口部とを連結するアンモニア水溶液循環用配管と、前記アンモニア水溶液循環用配管に設けられたポンプとを備えて成ることを特徴とする前記請求項 1 記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

【請求項 3】

前記側面部開口部には、前記貯留槽内の重ウラン酸アンモニウム粒子および不純物を除去する除去手段が設けられていることを特徴とする前記請求項 2 記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

【請求項 4】

前記貯留槽の底面部には、取出配管と、前記取出配管を開閉可能にする開閉手段とが設けられていることを特徴とする前記請求項 1～請求項 3 のいずれか 1 項に記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

【書類名】明細書

【発明の名称】重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置

【技術分野】

【0001】

本発明は、重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置に関し、さらに詳しくは、高品質の重ウラン酸アンモニウムを効率的に生産することができる重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置に関する。

【背景技術】

【0002】

非特許文献1～5によると、高温ガス炉用燃料は、一般的に以下のような工程を経て製造される。まず、酸化ウランの粉末を硝酸に溶かして、硝酸ウラニル原液とする。次に、この硝酸ウラニル原液に純水及び増粘剤等を添加し、攪拌して滴下原液とする。調製された滴下原液は、所定の温度に冷却され、粘度を調製後、細径の滴下ノズルを用いてアンモニア水溶液に滴下される。

【0003】

このアンモニア水溶液に滴下された液滴は、アンモニア水溶液表面に達するまでの間に、アンモニアガスを吹きかけられる。このアンモニアガスによって、液滴表面がゲル化され、これにより、アンモニア水溶液表面到達時における変形が防止される。アンモニア水溶液中における硝酸ウラニルは、アンモニアと十分に反応し、重ウラン酸アンモニウム粒子（以下、「ADU粒子」と略する場合がある。）となる。

【0004】

この重ウラン酸アンモニウム粒子は、乾燥された後、大気中で焙焼され、三酸化ウラン粒子となる。さらに、三酸化ウラン粒子は、還元及び焼結されることにより、高密度のセラミック状の二酸化ウラン粒子となる。この二酸化ウラン粒子をふるい分け、すなわち分級して、所定の粒子径を有する燃料核微粒子を得る。

【0005】

【非特許文献1】S. Kato "Fabrication of HTTR First Loading fuel", IAEA-TECDOC-1210, 187 (2001)

【非特許文献2】N. Kitamura "Present status of initial core fuel fabrication for the HTTR" IAEA-TECDOC-988, 373 (1997)

【非特許文献3】林 君夫、"高温工学試験研究炉の設計方針、製作性及び総合的健康性評価" JAERI-M 89-162 (1989)

【非特許文献4】湊 和生、"高温ガス炉燃料製造の高度技術の開発" JAERI-Research 98-070 (1998)

【非特許文献5】長谷川正義、三島良績 監修「原子炉材料ハンドブック」昭和52年10月31日発行 221-247頁、日刊工業新聞社

【0006】

ここで、従来のADU粒子製造装置においては、滴下された硝酸ウラニルを含有する液滴の内部までアンモニア水溶液を浸透させなければならなかった。

【0007】

このアンモニア水溶液の浸透のために、図3に示されるようなアンモニア水溶液が貯留された貯留槽22を使用することが一般的であった。この貯留槽22の上方に硝酸ウラニルを含有する液滴Aを滴下し、供給する液滴供給ノズル23より、貯留槽22内に貯留されたアンモニア水溶液中に、液滴Aを滴下する。

【0008】

すると、詳しくは、図4(A)に示されるように、硝酸ウラニルとアンモニウムイオンが反応し、重ウラン酸アンモニウム(ADU)B(図4(B)参照)が生成する。

【0009】

しかしながら、ADU粒子表面付近のアンモニア濃度が低下して、反応速度が遅くなる。また、ADU粒子中心部になるほど、反応が不十分となりやすいため、大きなADU粒子の生成が困難であり、後の工程による処理後の燃料核に、図4(C)に示されるような、内部に空隙のある、いわゆるシェル構造と呼ばれる不良品が生成してしまう場合がある。このため、ADU粒子生成のために過剰のアンモニアと反応時間が必要となり、非効率であるという問題がある。

【0010】

また、内部まで反応が終了していないADU粒子は、内部がゼリー状で、非常に軟らかく、かつ、ウランを含むことで比重が大きいため、ADU粒子が積み重なって堆積すると、ADU粒子が変形し、不良品が多発するという問題もある。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

本発明は、このような従来の問題点を解消し、高品質の重ウラン酸アンモニウムを効率的に生産することができる重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置を提供することをその課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0012】

前記課題を解決するための手段は、アンモニア水溶液を貯留する貯留槽と、前記貯留槽中のアンモニア水溶液中で、前記貯留槽に滴下された硝酸ウラニルとアンモニアとが反応して形成された重ウラン酸アンモニウム粒子が上昇流動可能となるように、アンモニア水溶液を前記貯留槽の底部に供給するアンモニア水溶液供給手段とを備えてなることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置である。

【0013】

この発明に係る重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の好適な態様においては、前記貯留槽の側面部および底部には、それぞれ側面部開口部および底部開口部が形成され、前記アンモニア水溶液供給手段は、前記側面部開口部と前記底部開口部とを連結するアンモニア水溶液循環用配管と、前記アンモニア水溶液循環用配管に設けられたポンプとを備えて成る。

【0014】

この発明に係る重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の好適な態様においては、前記側面部開口部には、前記貯留槽内の重ウラン酸アンモニウム粒子および不純物を除去する除去手段が設けられている。

【0015】

この発明に係る重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の好適な態様においては、前記貯留槽の底面部には、取出配管と、前記取出配管を開閉可能にする開閉手段とが設けられている。

【発明の効果】

【0016】

本発明によれば、重ウラン酸アンモニウム粒子が上昇流動可能な状態となることで、貯留槽内部の重ウラン酸アンモニウム粒子を攪拌するようになり、重ウラン酸アンモニウム粒子同士が堆積することがなくなるので、重ウラン酸アンモニウム粒子が変形を防止することができる。また、アンモニア水溶液が流動しているため、重ウラン酸アンモニウム粒子表面で反応して、アンモニアが消費されたアンモニア水溶液が、重ウラン酸アンモニウム粒子近傍から除去されて、新たに重ウラン酸アンモニウム粒子表面とアンモニア水溶液とが接触するので、反応の効率がよい。したがって、重ウラン酸アンモニウム粒子の変形がなく、高品質の重ウラン酸アンモニウム粒子を効率的に生産することができる。

【0017】

また、本発明によれば、アンモニア水溶液循環用配管と、前記アンモニア水溶液循環用配管に設けられたポンプとを備えることで、ポンプによりアンモニア水溶液が底部開口部

から貯留槽内に供給される。そして、底部に溜まる重ウラン酸アンモニウム粒子を下方よりアンモニア水溶液が押し上げることにより、重ウラン酸アンモニウム粒子が上昇流動可能に、アンモニア水溶液を前記貯留槽の底部に供給することができる。

【0018】

さらに、本発明によれば、除去手段が設けられていることで、アンモニア水溶液循環用配管内に不純物が混入することがなく、効率良く、貯留槽内にアンモニア水溶液を供給することができる。

【0019】

そして、本発明によれば、貯留槽の底部に溜まった重ウラン酸アンモニウム粒子が、重力によって、貯留槽の底面部および取出配管を経て、特別な設備を使用せずに貯留槽外部に取り出すことができる。また、開閉手段により、任意に重ウラン酸アンモニウム粒子を貯留槽外部に取り出すことができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0020】

[重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置]

図1には、本発明の一実施形態に係る重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の概略図が示されている。重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置1は、以下、「ADU粒子製造装置1」と略す。

【0021】

ADU粒子製造装置1は、貯留槽2と、液滴供給ノズル3と、アンモニア水溶液供給手段4とを備えて成る。

【0022】

[貯留槽]

貯留槽2は、アンモニア水溶液を貯留する槽であり、この貯留槽2において、アンモニア水溶液に含まれるアンモニアと、後述する液滴供給ノズル3から滴下された硝酸ウラニル含有原液（以下、「原液」と称することがある。）に含まれる硝酸ウラニルとが化学反応して、ADU粒子Bが形成される。

【0023】

前記貯留槽2は、耐腐食性、特に、耐アルカリ性、耐熱性、耐圧性を有する材料で形成されていれば、特に制限は無く、前記材料としては、例えば、ガラス、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウム又はジルコニウム合金等を挙げることができる。

【0024】

前記貯留槽2の形状としては、アンモニア水溶液を貯留することができる限りその形状に特に制限がないが、図1に示されるように、例えば、その上部5が円筒状であり、その底部6が逆円錐状であることが好ましい。

【0025】

これによれば、ADU粒子を取り出す際、底部6にADU粒子Bが残留することがないので、メンテナンスが簡単になる。

【0026】

前記貯留槽2の側面部7および底部6には、それぞれ側面部開口部8および底部開口部9が形成されている。これら側面部開口部8および底部開口部9の大きさは、製造するADU粒子Bの大きさに応じて、適宜設定される。

【0027】

また、側面部開口部8には、前記貯留槽2内の重ウラン酸アンモニウム粒子および不純物を除去する除去手段10が設けられていることが好ましく、底部開口部9にも、この除去手段10が設けられていることがより好ましい。

【0028】

除去手段10としては、著しい圧力損失がなく、アンモニア雰囲気で使用できるものであればよく、セラミックス製のフィルター、ステンレス等の金属メッシュ、ガラスウール

等が挙げられる。

【0029】

さらに、貯留槽 2 の底面部 11 には、取出配管 12 と、前記取出配管 12 を開閉可能にする開閉手段 13 とが設けられていることが好ましい。これによれば、貯留槽 2 の底部 6 に溜まった ADU 粒子が、重力によって、貯留槽 2 の底面部 11 および取出配管 12 を経て、特別な設備を使用せずに貯留槽 2 外部に取り出すことができる。また、開閉手段 13 により、任意に ADU 粒子を貯留槽 2 外部に取り出すことができる。

【0030】

取出配管 12 としては、耐腐食性、特に、耐アルカリ性、耐熱性、耐圧性を有する材料で形成されていれば、特に制限は無く、前記材料としては、例えば、ガラス、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウム又はジルコニウム合金等を挙げることができる。

【0031】

開閉手段 13 としては、取出配管 12 を開閉可能にする手段であれば良く、例えば、ボールバルブ、バタフライバルブ等が挙げられる。

【0032】

[液滴供給ノズル]

液滴供給ノズル 3 は、前記貯留槽 2 に貯留されるアンモニア水溶液に原液を粒子状に滴下させるノズルである。液滴供給ノズル 3 の内径は、製造する ADU 粒子 B の大きさに応じて、適宜設定される。

【0033】

[アンモニア水溶液供給手段]

アンモニア水溶液供給手段 4 は、前記貯留槽 2 に滴下された硝酸ウラニルとアンモニアとが反応して形成された重ウラン酸アンモニウム粒子が上昇流動可能となるように、アンモニア水溶液を前記貯留槽 2 の底部 6 に供給する手段である。

【0034】

アンモニア水溶液供給手段 4 は、側面部開口部 8 と底部開口部 9 とを連結するアンモニア水溶液循環用配管 14 と、前記アンモニア水溶液循環用配管 14 に設けられたポンプ 15 とを備えて成ることが好ましい。

【0035】

アンモニア水溶液循環用配管 14 は、底部開口部 9 側において、水平方向に対して下方に傾斜して連結されることが好ましい。

【0036】

これによれば、底部開口部 9 から供給されるアンモニア水溶液が、上昇流となり、底部 6 近傍に溜まった ADU 粒子 B を下側から押出すようになるため、ADU 粒子 B が上昇流動可能な状態とすることができる。

【0037】

また、アンモニア水溶液循環用配管 14 は、底部開口部 9 側のアンモニア水溶液循環用配管 14 の中心軸と、対向する底部 6 の内壁面 6A とが略一直線上になるように連結されることがより好ましい。

【0038】

これによれば、底部開口部 9 から底部開口部 9 から供給されるアンモニア水溶液が、上昇流となり、底部 6 近傍に溜まった ADU 粒子 B を下側から押出すようになる。そして、この上昇流は、対向する底部 6 の内壁面 6A に沿って上昇することとなるため、内壁面 6A に沿った上昇流は、その後、貯留槽 2 の内壁面と衝突して、貯留槽 2 の内部で旋回流を形成するようになる。そのため、貯留槽 2 内部の ADU 粒子 B を攪拌するようになり、ADU 粒子 B 同士が堆積することがなくなるので、ADU 粒子 B の変形をより一層防止することができる。

【0039】

[ADU 粒子製造装置の動作]

上記したADU粒子製造装置1の動作を以下に説明する。まず、ポンプ15を作動させ、側面部開口部8、ポンプ15、底部開口部9の順にアンモニア水溶液が流れるようにする。

【0040】

そして、液滴供給ノズル3から液滴Aを貯留槽2へ滴下させる。すると、硝酸ウラニルとアンモニアが反応して、重ウラン酸アンモニウム（ADU）が生成される。ADU粒子Bが生成されるとともに、このADU粒子Bは、貯留槽2の底部6へと沈降していく。

【0041】

貯留槽2内では、底部開口部9から供給されたアンモニア水溶液により、上昇流となり、底部6近傍に溜まるADU粒子Bを下側から押出すようになるため、ADU粒子Bが上昇流動可能な状態となる。

【0042】

以上の操作を所定の時間行い、ADU粒子Bの反応が十分に完了した後、ポンプ15を止め、貯留槽2内部の流動状態を止める。

【0043】

その後、開閉手段13により、取出配管12を開状態とし、貯留槽2外部へADU粒子Bを取り出す。

【0044】

上述のような本実施形態によれば、次のような効果がある。

(1) ADU粒子Bが上昇流動可能な状態となることで、貯留槽2内部のADU粒子Bを攪拌するようになり、ADU粒子B同士が堆積することがなくなるので、ADU粒子Bの変形を防止することができる。また、アンモニア水溶液が流動しているため、ADU粒子B表面で反応して、アンモニアが消費されたアンモニア水溶液が、ADU粒子B近傍から除去されて、新たにADU粒子B表面とアンモニア水溶液とが接触するので、反応の効率がよい。したがって、ADU粒子の変形がなく、高品質のADU粒子を効率的に生産することができる。

【0045】

なお、本発明は前記実施形態に限定されるものではなく、本発明の目的を達成できる範囲での変形、改良は、本発明に含まれるものである。

【0046】

前記実施形態においては、例えば、アンモニア水溶液循環用配管14は、底部開口部9側において、水平方向に対して下方に傾斜して連結されることにより、アンモニア水溶液の上昇流を形成していたが、これに限られず、図2に示すように、底部開口部9近傍に設けられたガイド板16により、上昇流を形成するようにしてもよい。このガイド板16は、水平方向に対して上方に傾斜して設けられている。

【0047】

前記実施形態においては、例えば、底部6は、逆円錐状であったが、底部6も円筒形状であってもよい。

【実施例】

【0048】

以下、実施例および比較例を挙げて、本発明をより具体的に説明する。なお、本発明は実施例の内容に限定されるものではない。

【0049】

【実施例1】

前記実施形態における図1のADU粒子製造装置を使用して、ADU粒子を製造した。なお、貯留槽の内容積は、70リットルであった。アンモニア水溶液の濃度は、25体積%であった。まず、ポンプ15を作動させ、側面部開口部8、ポンプ15、底部開口部9の順にアンモニア水溶液が流れるようにした。

【0050】

そして、液滴供給ノズル3から液滴Aを貯留槽2へ滴下させた。すると、硝酸ウラニル

とアンモニアが反応して、重ウラン酸アンモニウム (ADU) が生成された。なお、滴下した原液の量は、約 10 リットルであった。

【0051】

貯留槽 2 内では、底部開口部 9 から供給されたアンモニア水溶液により、上昇流となり、底部 6 近傍に溜まる ADU 粒子 B を下側から押出すようになるため、ADU 粒子 B が上昇流動の状態となっていた。

【0052】

以上の操作を所定の時間行い、ADU 粒子 B の反応が十分に完了した後、ポンプ 15 を止め、貯留槽 2 内部の流動状態を止めた。

【0053】

その後、開閉手段 13 により、取出配管 12 を開状態とし、貯留槽 2 外部へ ADU 粒子 B を取り出した。

【0054】

ADU 粒子に対して、所定の後処理をしたのち、得られた燃料核を外観観察、断面観察を行ったところ、ADU 粒子の変形や、内部に空隙を有する、いわゆるシェル構造の ADU 粒子は確認されなかった。したがって、高品質の重ウラン酸アンモニウム (ADU) を効率的に生産することができることが分かった。

【図面の簡単な説明】

【0055】

【図 1】図 1 は、本発明に係る重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置を示す概略図である。

【図 2】図 2 は、本発明に係る重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の変形例を示す概略図である。

【図 3】図 3 は、従来の重ウラン酸アンモニウム粒子を製造する設備を示す概略図である。

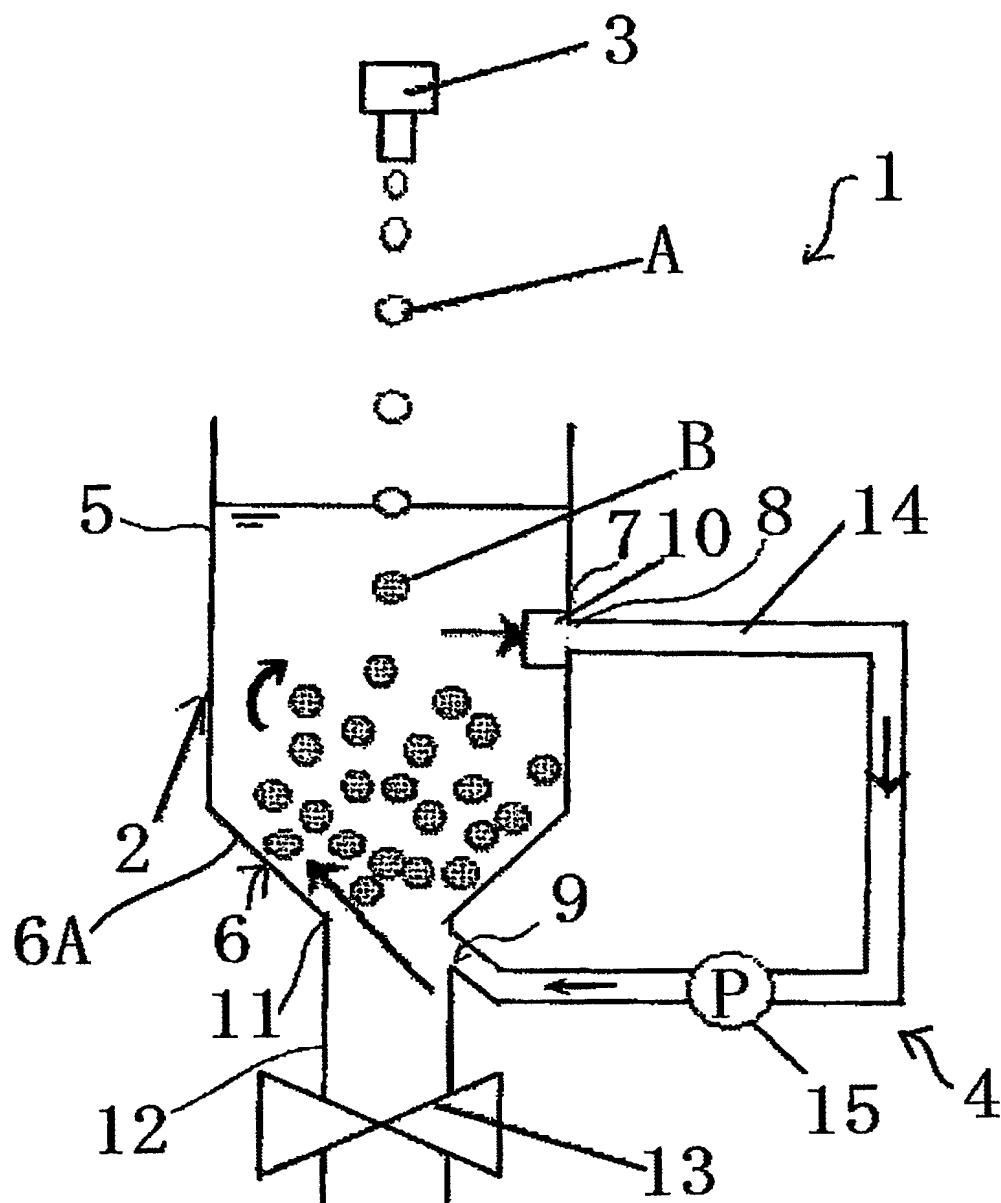
【図 4】図 4 は、重ウラン酸アンモニウム粒子の反応を示す概略図 (A)、正常な重ウラン酸アンモニウム粒子の断面図 (B)、空隙を有する重ウラン酸アンモニウム粒子の断面図 (C) である。

【符号の説明】

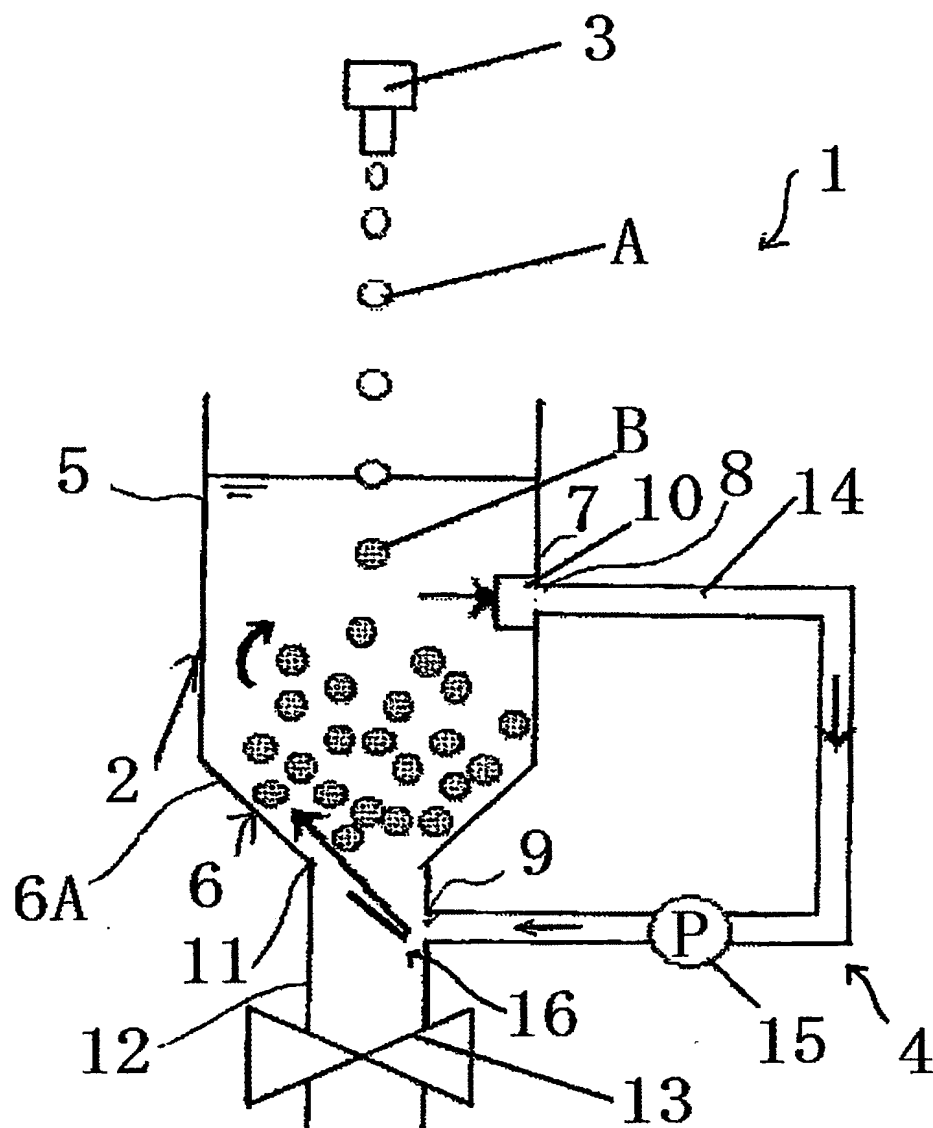
【0056】

- 1 ADU 粒子製造装置
- 2 貯留槽
- 3 液滴供給ノズル
- 4 アンモニア水溶液供給手段
- 5 上部
- 6 底部
- 7 側面部
- 8 側面部開口部
- 9 底部開口部
- 10 除去手段
- 11 底面部
- 12 取出配管
- 13 開閉手段
- 14 アンモニア水溶液循環用配管
- 15 ポンプ
- 16 ガイド板
- 22 貯留槽
- 23 液滴供給ノズル
- A 液滴
- B ADU 粒子

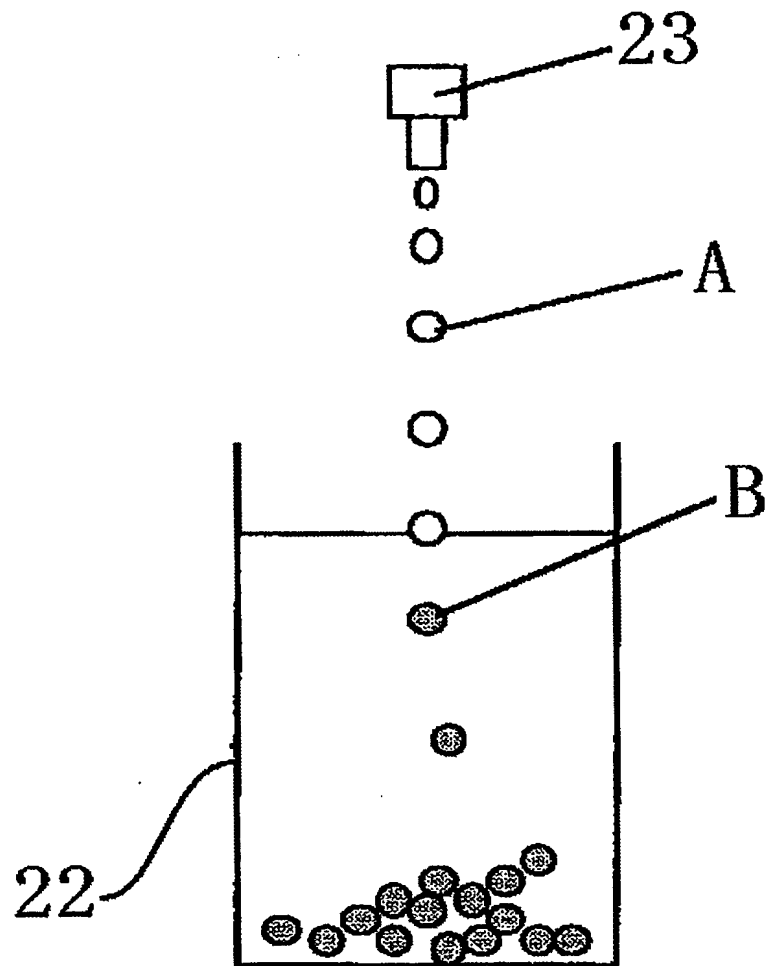
【書類名】 図面
【図 1】



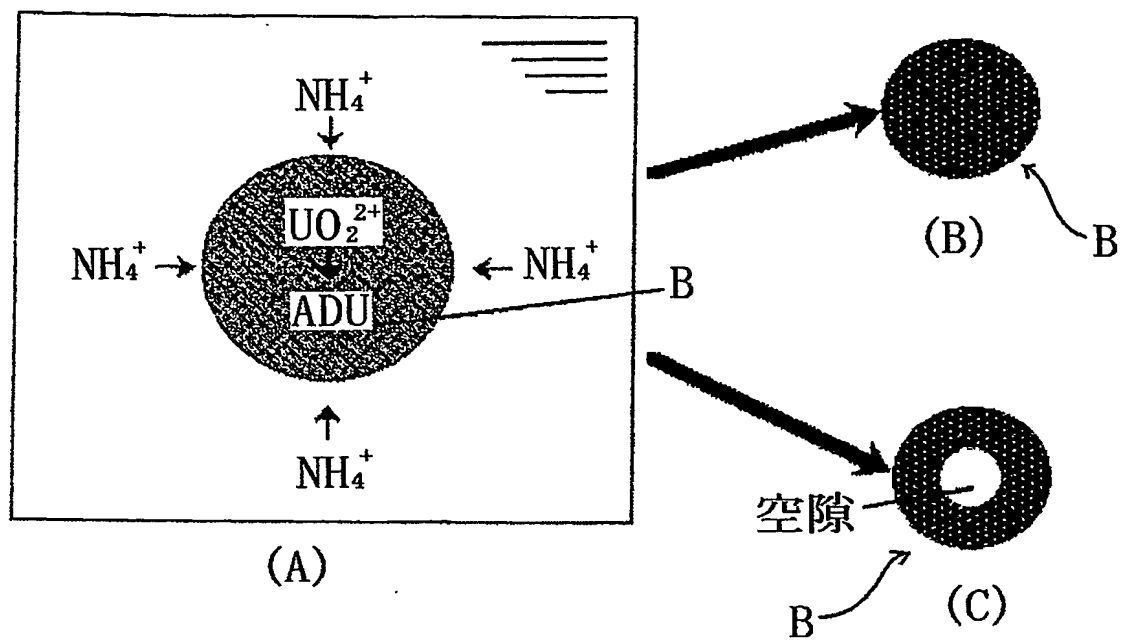
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【書類名】要約書**【要約】**

【課題】 高品質の重ウラン酸アンモニウムを効率的に生産することができる重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置を提供すること。

【解決手段】 アンモニア水溶液を貯留する貯留槽 2 と、前記貯留槽 2 中のアンモニア水溶液中で、前記貯留槽 2 に滴下された硝酸ウラニルとアンモニアとが反応して形成された重ウラン酸アンモニウム粒子（ADU 粒子）B が上昇流動可能に、アンモニア水溶液を前記貯留槽 2 の底部 6 に供給するアンモニア水溶液供給手段 4 とを備えてなることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置 1 である。

【選択図】

図 1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 4 - 0 2 6 1 3 4
受付番号	5 0 4 0 0 1 7 1 0 6 7
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0 0 9 5
作成日	平成 1 6 年 2 月 3 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】 平成16年 2月 2日

特願 2 0 0 4 - 0 2 6 1 3 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 1 6 5 6 9 7]

1. 変更年月日	2 0 0 1 年 8 月 2 0 日
[変更理由]	住所変更
住 所	東京都港区三田三丁目 1 4 番 1 0 号
氏 名	原子燃料工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.